

JP1996283261A

1996-10-29

Bibliographic Fields**Document Identity**

(19)【発行国】

日本国特許庁 (JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報 (A)

(11)【公開番号】

特開平8-283261

(43)【公開日】

平成8年(1996)10月29日

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication Hei 8 - 283261

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1996 (1996) October 29 days

Public Availability

(43)【公開日】

平成8年(1996)10月29日

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1996 (1996) October 29 days

Technical

(54)【発明の名称】

3-フェニルトリアゾール誘導体および殺虫、殺
ダニ剤

(54) [Title of Invention]

3-PHENYL TRIAZOLE DERIVATIVE AND
INSECTICIDAL、 MITICIDE

(51)【国際特許分類第6版】

C07D401/12 249

A01N 43/653

【FI】

C07D401/12 249

A01N 43/653 A

【請求項の数】

2

【出願形態】

FD

【全頁数】

12

(51) [International Patent Classification, 6th Edition]

C07D401/12 249

A01N 43/653

[FI]

C07D401/12 249

A01N 43/653 A

[Number of Claims]

2

[Form of Application]

FD

[Number of Pages in Document]

12

Filing

【審査請求】

未請求

(21)【出願番号】

特願平7-108242

(22)【出願日】

[Request for Examination]

Unrequested

(21) [Application Number]

Japan Patent Application Hei 7 - 108242

(22) [Application Date]

平成7年(1995)4月7日

1995 (1995) April 7 days

Parties**Applicants**

【出願人】

(71) [Applicant]

【識別番号】

[Identification Number]

000000169

000000169

【氏名又は名称】

[Name]

クミアイ化学工業株式会社

KUMIAI CHEMICAL INDUSTRY CO. LTD. (DN
69-112-2964)

【住所又は居所】

[Address]

東京都台東区池之端1丁目4番26号

Tokyo Prefecture Taito-ku Ikenohata 1-4-26

【出願人】

(71) [Applicant]

【識別番号】

[Identification Number]

000102049

000102049

【氏名又は名称】

[Name]

イハラケミカル工業株式会社

IHARA CHEMICAL INDUSTRY CO. LTD. (DN
69-060-0093)

【住所又は居所】

[Address]

東京都台東区池之端1丁目4番26号

Tokyo Prefecture Taito-ku Ikenohata 1-4-26

Inventors

【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

尾崎 正美

Ozaki, Masami

【住所又は居所】

[Address]

静岡県磐田郡福田町塩新田408番地の1 株
式会社ケイ・アイ研究所内Inside of Shizuoka Prefecture Iwata-gun Fukude-cho
Shioshinden 40 8-1 Kabushiki Kaisha K-I Research
Laboratories

【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

永井 昭英

Nagai Akihide

【住所又は居所】

[Address]

静岡県磐田郡福田町塩新田408番地の1 株
式会社ケイ・アイ研究所内Inside of Shizuoka Prefecture Iwata-gun Fukude-cho
Shioshinden 40 8-1 Kabushiki Kaisha K-I Research
Laboratories

【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

矢野 祐幸

Yano, Hiroyuki

【住所又は居所】

静岡県小笠郡菊川町加茂1809番地

[Address]

Shizuoka Prefecture Ogasa-gun Kikugawa-cho Kamo 1809
address

(72)【発明者】

【氏名】

淺岡 三枝子

(72) [Inventor]

[Name]

浅岡 Saegusa child

【住所又は居所】

静岡県小笠郡菊川町加茂1809番地

[Address]

Shizuoka Prefecture Ogasa-gun Kikugawa-cho Kamo 1809
address

(72)【発明者】

【氏名】

栗原 浩

(72) [Inventor]

[Name]

Hiroshi Kurihara

【住所又は居所】

静岡県小笠郡菊川町青葉台1丁目6番4号

[Address]

Shizuoka Prefecture Ogasa-gun Kikugawa-cho Aobadai 1-6-4

(72)【発明者】

【氏名】

鳴津 朋徳

(72) [Inventor]

[Name]

Shimazu Tomo virtue

【住所又は居所】

静岡県浜松市佐鳴台6丁目10番地の48

[Address]

Shizuoka Prefecture Hamamatsu City Sanarudai 6-Chome 10
48**Abstract**

(57)【要約】

(57) [Abstract]

【構成】

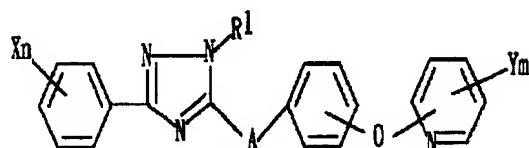
[Constitution]

一般式[I]

General Formula {I }

【化 1】

[Chemical Formula 1]



(式中、R¹ はアルキル基を示し、X はハロゲン原子を示し、Y はハロゲン原子又はハロアルキル基を示し、A はメチレン基、メチルメチレン基、エチルメチレン基、ジメチルメチレン基、シクロアルキレン基、メチレンオキシ基を示し、m は 0 又は 1~4 の整数を示し、m が 2 以上のとき Y は任意に同種又は異種の組み合わせでもよく、n は 0 又は 1~5 の整数を示し、n が 2 以上のとき X は任意に同種又は異種の組み合わせでもよい。) にて表されるトリアゾール誘導体およびこれを有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤である。

It is a triazole derivative which is displayed with (In Formula, R¹ to show alkyl group, X to show the halogen atom, Y to show halogen atom or haloalkyl group, A to show the methylene group, methyl methylene group, ethyl methylene group, dimethyl methylene group, cycloalkylene group, methylene oxy group, m to show integer of 0 or 1~4, when m is 2 or more, Y to be good to option even with combination of the same kind or different kind, as for n integer of 0 or 1~5 showing, When n is 2 or more, X is good to option even with combination of same kind or different kind.) and a insecticidal, miticide

れを有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

フェニルトリアゾール誘導体は、有害昆虫に活性を有することが知られている(例えば、特開平5-310712号公報明細書)。

また、本明細書と類似の化合物が米国特許第5196537号公報明細書に記載されているが、抗高血圧作用を示すとの記載しかなく、殺虫活性については何ら知られていない。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

近年、既存の市販殺虫剤は残留、蓄積、環境汚染等の問題から使用が規制されたり、長期使用によって抵抗性害虫が発生し、効力の薄れたものも出ている。

そのため低薬量において高い効力を有し、安全性に優れた殺虫剤の開発が望まれている。

【0004】

【課題を解決するための手段】

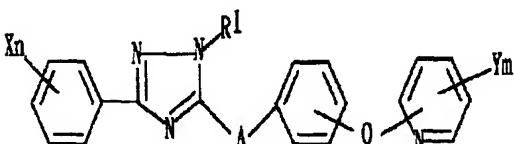
本発明者らは、種々の3-フェニル-1-アルキル-1H-1,2,4-トリアゾール誘導体を合成し、その生理活性について検討を重ねた。

その結果、本発明化合物が、種々の有害昆虫類及び有害ダニ類、特にコナガ及びハダニ類に対して、極めて優れた殺虫、殺ダニ活性を有することを見出し本発明を完成したものである。

即ち、本発明は一般式[I]

【0005】

【化3】



〔式中、R¹はアルキル基を示し、Xはハロゲン原子を示し、Y^mはハロゲン原子又はハロアルキル基を示し、Aは式〕

and insecticidal、miticide which contains this as active ingredient.

【0002】

【Prior Art】

phenyl triazole derivative has activity in harmful insect, it is known densely, (for example, Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-31 0712 disclosure Specification).

In addition, this specification and similar compound are stated in U.S. Patent 5196537 disclosure Specification, but when antihypertension action is shown, what it is not known without only statement, concerning insecticidal activity.

【0003】

【Problems to be Solved by the Invention】

Recently, existing commercial insecticide use is regulated from remains, accumulation and environmental contamination or other problem, resistant harmful insect occurs with long-term use, also those where effectiveness fades have come out.

Because of that it possesses high effectiveness in low dose, development of insecticide which is superior in safety is desired.

【0004】

【Means to Solve the Problems】

these inventors synthesized various 3-phenyl-1-alkyl-1H-1,2,4-triazole derivative, repeated examination concerning physiological activity.

As a result, the compound of this invention, has insecticidal, miticidal activity which quite is superior the various harmful insect and harmful mite and especially *Plutella xylostella* (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth) and vis-a-vis the *Tetranychidae* (spider mite), it is something which you discover densely and completes the this invention.

Namely, as for this invention General Formula {I}

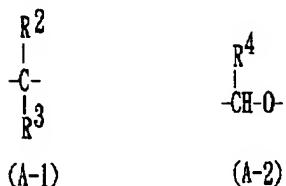
【0005】

【Chemical Formula 3】

〔In Formula, R¹ to show alkyl group, X to show the halogen atom, Y to show halogen atom or haloalkyl group, as for A formula〕

【0006】

【化2】



(式中、 R^2 及び R^3 は同種又は異種の組み合わせでもよく、水素原子又はアルキル基を示し、また R^2 及び R^3 は環を形成してもよく、 R^4 は水素原子又はアルキル基を示す。)を示し、 m は 0 又は 1~4 の整数を示し、 m が 2 以上のとき Y は任意に同種又は異種の組み合わせでもよく、 n は 0 又は 1~5 の整数を示し、 n が 2 以上のとき X は任意に同種又は異種の組み合わせでもよい。

]にて表されるトリアゾール誘導体及びこれを有効成分として含有する殺虫、殺ダニ剤である。

【0007】

本明細書において、アルキル基としては、炭素数が 1~6 の直鎖又は枝分かれしたアルキル基、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソアミル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、イソヘキシル基、3,3-ジメチルブチル基等を挙げることができる。

【0008】

ハロゲン原子とは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を示す。

【0009】

シクロアルキレン基としては、炭素数が 3~6 のシクロアルキレン基、例えばシクロプロピレン基、シクロペンタレン基、シクロヘキサレン基等を挙げることができる。

【0010】

一般式[I]において A で示される置換基の、式 A-1 で示される基としては、メチレン基、メチルメチレン基、エチルメチレン基、ジメチルメチレン基、シクロアルキレン基等を、A-2 で示される基としてはメチレンオキシ基、メチルメチレンオキシ基等を挙げることができる。

【0011】

前記一般式[I]において、好ましい化合物群としては、 R^1 がメチル基を示し、X が塩素原子又は

【0006】

[Chemical Formula 2]

(In Formula, R^2 and R^3 are good even with combination of same kind or different kind, hydrogen atom or alkyl group is shown, in addition R^2 and R^3 may form ring, R^4 shows hydrogen atom or alkyl group.) is shown, m shows integer of 0 or 1~4, when m is 2 or more, Y is good to option even with combination of same kind or different kind, n shows integer of 0 or 1~5, when n is 2 or more, X is good to option even with combination of the same kind or different kind.

) With it is a triazole derivative which is displayed and a insecticidal, miticide which contains this as active ingredient.

【0007】

In this specification, as alkyl group, carbon number straight chain or can list alkyl group, for example methyl group, ethyl group, n-propyl group, isopropyl group, n-butyl group, isobutyl group, s-butyl group, t-butyl group and n-pentyl group, isoamyl group, neopentyl group, n-hexyl group, isohexyl group, 3,3-dimethylbutyl group etc which branch 1 - 6 are done.

【0008】

halogen atom, fluorine atom, chlorine atom, bromine atom, iodine atom is shown.

【0009】

As cycloalkylene group, carbon number can list cycloalkylene group, for example cyclopropylene group, cyclopentylene group, cyclohexylene group etc 3 - 6.

【0010】

methylene oxy group, methyl methylene oxy group as group which is shown methylene group, methyl methylene group, ethyl methylene group, dimethyl methylene group, cycloalkylene group etc, with A-2 as group which is shown, with type A-1 of substituent which is shown with A in General Formula {I}, etc can be listed.

【0011】

In aforementioned General Formula {I}, as desirable group of compounds, R^1 to show methyl group, X to show chlorine

フッ素原子を示し、n が 1~2 の整数を示し、n が 2 のとき X は任意に同種又は異種の組み合わせでもよく、Y がハロゲン原子又はトリフルオロメチル基を示し、m が 0~2 の整数を示し、m が 2 のとき Y は任意に同種又は異種の組み合わせでもよく、A がメチレン基、エチルメチレン基、ジメチルメチレン基、メチレンオキシ基を示す化合物が挙げられる。

【0012】

次に、一般式[I]で表される本発明化合物の代表的な具体例を表 1~表 5 に例示する。

尚、化合物番号は以後の記載において参照される。

【0013】

【表 1】

atom or fluorine atom, n to show integer of 1 - 2, when n 2 being, X to be good to option even with combination of same kind or different kind, Y to show the halogen atom or trifluoromethyl group, m integer 0 - 2 showing, When m 2 being, Y is good to option even with combination of same kind or different kind, you can list compound where A shows methylene group, ethyl methylene group, dimethyl methylene group, methylene oxy group.

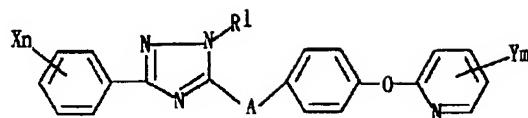
【0012】

Next, representative embodiment of the compound of this invention which is displayed with General Formula {I } is illustrated to Table 1~Table 5.

Furthermore compound number is referred to at time of stating from now on.

【0013】

【Table 1】



化合物番号	R ¹	Xn	A	Ym	融点 (°C) または 屈折率 (n _D ²⁰)
1	CH ₃	H	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
2	CH ₃	H	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
3	CH ₃	H	-CH ₂ O-	3, 5-(CF ₃) ₂	
4	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ O-	5-Cl	
5	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
6	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
7	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ O-	3-CF ₃ , 5-CF ₃	
8	CH ₃	2-Br	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
9	CH ₃	2-Br	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
10	CH ₃	2-I	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
11	CH ₃	2-I	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
12	CH ₃	2, 6-R ₂	-CH ₂ O-	3-CF ₃	
13	CH ₃	2, 6-R ₂	-CH ₂ O-	5-Cl	
14	CH ₃	2, 6-R ₂	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
15	CH ₃	2, 6-R ₂	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
16	CH ₃	2, 6-R ₂	-CH ₂ O-	3, 5-(CF ₃) ₂	
17	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	H	
18	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	3-CF ₃	
19	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	5-Cl	
20	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
21	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
22	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	3, 5-(CF ₃) ₂	
23	i-C ₄ H ₉	2, 6-R ₂	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
24	i-C ₄ H ₉	2, 6-R ₂	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
					110~114

【0014】

【表 2】

[0014]

[Table 2]

化合物番号	R ¹	Xn	A	Ym	融点(℃) または 屈折率(n _D ²⁰)
25	i-C ₄ H ₉	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
26	i-C ₄ H ₉	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
27	C ₆ H ₁₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
28	C ₆ H ₁₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
29	C ₆ H ₁₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	5-CF ₃	
30	C ₆ H ₁₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ O-	3-Cl, 5-CF ₃	
31	CH ₃	2-Cl	-CH(CH ₃)O-	5-CF ₃	
32	CH ₃	2-Cl	-CH(CH ₃)O-	3-Cl, 5-CF ₃	
33	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(CH ₃)O-	5-CF ₃	
34	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(CH ₃)O-	3-Cl, 5-CF ₃	
35	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(CH ₃)O-	5-CF ₃	
36	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(CH ₃)O-	3-Cl, 5-CF ₃	
37	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ -	H	
38	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ -	5-CI	
39	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ -	5-CF ₃	
40	CH ₃	2-Cl	-CH ₂ -	3-Cl, 5-CF ₃	
41	CH ₃	2-Br	-CH ₂ -	5-CF ₃	
42	CH ₃	2-Br	-CH ₂ -	3-Cl, 5-CF ₃	
43	CH ₃	2-I	-CH ₂ -	5-CF ₃	
44	CH ₃	2-I	-CH ₂ -	3-Cl, 5-CF ₃	
45	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ -	3-CI	
46	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ -	3-CF ₃	
47	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ -	5-CI	
48	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ -	5-CF ₃	
49	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ -	3-Cl, 5-CF ₃	
50	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH ₂ -	3, 5-(CF ₃) ₂	
51	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	H	
52	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	3-CI	
53	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	3-CF ₃	
54	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	5-CI	

[0015]

【表 3】

[0015]

[Table 3]

化合物番号	R ¹	Xn	A	Ym	融点 (°C) または 屈折率 (n _D ²⁰)
55	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	5-CF ₃	1. 5530
56	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	3-Cl, 5-CF ₃	
57	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	3, 5-(CF ₃) ₂	
58	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	5-CF ₃	
59	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	3-Cl, 5-CF ₃	
60	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-CH ₂ -	3, 5-(CF ₃) ₂	
61	CH ₃	2-Cl	-CH(C ₂ H ₅)-	5-CF ₃	
62	CH ₃	2-F	-CH(C ₂ H ₅)-	3-Cl, 5-CF ₃	
63	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(C ₂ H ₅)-	5-Cl	
64	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(C ₂ H ₅)-	5-CF ₃	
65	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(C ₂ H ₅)-	3-Cl, 5-CF ₃	
66	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(C ₂ H ₅)-	3-CF ₃	
67	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(C ₂ H ₅)-	5-Cl	
68	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(C ₂ H ₅)-	5-CF ₃	1. 5610
69	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(C ₂ H ₅)-	3-Cl, 5-CF ₃	測定不可
70	C ₂ H ₅	2, 6-F ₂	-CH(C ₂ H ₅)-	5-CF ₃	
71	C ₂ H ₅	2, 6-F ₂	-CH(C ₂ H ₅)-	3-Cl, 5-CF ₃	
72	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-CH(C ₂ H ₅)-	5-CF ₃	
73	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-CH(C ₂ H ₅)-	3-Cl, 5-CF ₃	
74	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(i-Pr)-	5-Cl	
75	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(i-Pr)-	5-CF ₃	
76	CH ₃	2, 6-F ₂	-CH(i-Pr)-	3-Cl, 5-CF ₃	
77	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(i-Pr)-	5-Cl	
78	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(i-Pr)-	5-CF ₃	
79	CH ₃	2-Cl, 6-F	-CH(i-Pr)-	3-Cl, 5-CF ₃	
80	CH ₃	2, 6-F ₂	-C(CH ₃) ₂ -	5-CF ₃	
81	CH ₃	2, 6-F ₂	-C(CH ₃) ₂ -	3-Cl, 5-CF ₃	
82	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ -	3-Cl	
83	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ -	3-CF ₃	
84	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ -	5-Cl	

【0016】

【表 4】

[0016]

[Table 4]

化合物番号	R ¹	Xn	A	Ym	融点 (°C) または 屈折率 (n _D ²⁰)
85	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ ⁻	5-CF ₃	測定不可
86	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ ⁻	3-Cl, 5-CF ₃	測定不可
87	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ ⁻	3, 5-(CF ₃) ₂	
88	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ ⁻	5-CF ₃	
89	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ ⁻	3-Cl, 5-CF ₃	
90	C ₂ H ₅	2-Cl, 6-F	-C(CH ₃) ₂ ⁻	3, 5-(CF ₃) ₂	
91	CH ₃	2, 6-F ₂	-C(C ₂ H ₅) ₂ ⁻	5-CF ₃	
92	CH ₃	2, 6-F ₂	-C(C ₂ H ₅) ₂ ⁻	3-Cl, 5-CF ₃	
93	CH ₃	2, 6-F ₂	-C(C ₂ H ₅) ₂ ⁻	3, 5-(CF ₃) ₂	
94	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(C ₂ H ₅) ₂ ⁻	5-CF ₃	
95	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(C ₂ H ₅) ₂ ⁻	3-Cl, 5-CF ₃	
96	CH ₃	2-Cl, 6-F	-C(C ₂ H ₅) ₂ ⁻	3, 5-(CF ₃) ₂	
97	CH ₃	2-Cl	△	5-CF ₃	
98	CH ₃	2-Cl	△	3-Cl, 5-CF ₃	
99	CH ₃	2-Cl	△	3, 5-(CF ₃) ₂	
100	CH ₃	2-F	△	5-Cl	
101	CH ₃	2-F	△	5-CF ₃	
102	CH ₃	2-F	△	3-Cl, 5-CF ₃	
103	CH ₃	2, 6-F ₂	△	5-Cl	
104	CH ₃	2, 6-F ₂	△	5-CF ₃	
105	CH ₃	2, 6-F ₂	△	3-Cl, 5-CF ₃	
106	CH ₃	2, 6-F ₂	△	3, 5-(CF ₃) ₂	
107	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	5-Cl	
108	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	5-CF ₃	測定不可
109	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	3-Cl, 5-CF ₃	
110	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	3, 5-(CF ₃) ₂	
111	CH ₃	2, 6-F ₂	△	5-CF ₃	
112	CH ₃	2, 6-F ₂	△	3-Cl, 5-CF ₃	
113	CH ₃	2, 6-F ₂	△	3, 5-(CF ₃) ₂	
114	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	5-CF ₃	

【0017】

【0017】

【表 5】

[Table 5]

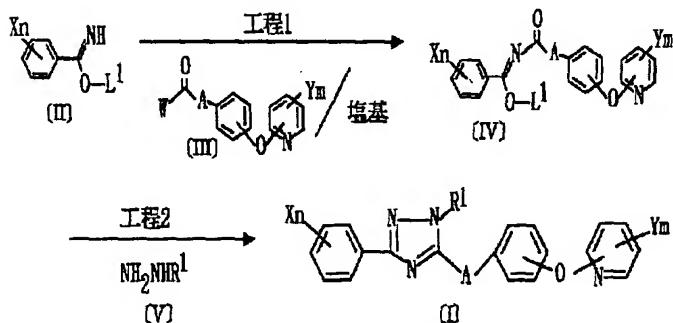
化合物番号	R ¹	X n	A	Y m	融点(℃) または 屈折率(n _D ²⁰)
115	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	3-Cl, 5-CP ₃	
116	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	3, 5-(CF ₃) ₂	
117	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	5-CP ₃	
118	CH ₃	2-Cl, 6-F	△	3-Cl, 5-CP ₃	
119	CH ₃	2, 6-F ₂	△	5-CP ₃	
120	CH ₃	2, 6-F ₂	△	3-Cl, 5-CP ₃	

一般式[I]で示される本発明化合物は、例えば以下に示す製造法に従って製造することができる、この方法に限定されるものではない。

製造法 1

【0018】

【化 5】



(式中、L¹はアルキル基を示し、Wはハロゲン原子を示し、A、R¹、X、Y、m、およびnは前記と同じ意味を表す。)

【0019】

一般式[II]で表されるイミデート誘導体を塩基の存在下、一般式[III]で表される酸ハロゲン化物誘導体と不活性溶媒中で反応させて一般式[IV]で表される化合物が製造される。

ここで、化合物[IV]は単離して工程2の反応に用いるか、あるいは単離精製することなく工程2の反応に用いてよい。

【0020】

工程1で使用できる溶媒としては、反応を阻害しない溶媒であれば良く、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジグライム

Following to production method which is shown below for example, it can produce the compound of this invention which is shown with General Formula {I}, but it is not something which is limited in this method.

production method 1

【0018】

【Chemical Formula 5】

(In Formula, L¹ shows alkyl group, W shows halogen atom, A, R¹, X, Y, m, and n display same meaning as description above.)

【0019】

Reacting in acid halide derivative and inert solvent which under existing of base, are displayed imidate derivative which is displayed with General Formula {II} with the General Formula {III} compound which is displayed with General Formula {IV} is produced.

Here, isolating, it uses compound [IV] for reaction of step 2, or it is possible to use for reaction of step 2 without the isolation and purification doing.

【0020】

If it is a solvent which does not obstruct reaction as solvent which can be used with step 1, it is good, for example diethyl ether, tetrahydrofuran, dioxane, diglyme or other ethers.

等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、酢酸エチル、酢酸メチル等のエステル類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0021】

使用できる塩基としては、トリエチルアミン、トリブチルアミン、N,N,-ジメチルアニリン、ピリジン、4-N,N-ジメチルアミノピリジン等の有機塩基、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の無機塩基があげられる。

【0022】

反応試剤の使用量は、通常、一般式[II]で示される化合物 1 モルに対し、一般式[III]で示される化合物が 0.8~2.0 倍モル、塩基が 1.0~2.0 倍当量である。

反応温度は 0 deg C から反応系の還流温度の間で任意の温度を設定できる。

反応時間は化合物により異なるが通常 1 時間~24 時間の間で設定できる。

【0023】

工程 2 において、化合物[IV]は一般式[V]で表されるヒドラジンと反応させることにより、一般式[I]で表される本発明化合物を製造することができる。

【0024】

ここで使用できる溶媒としては、反応を阻害しない溶媒であれば良く、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジグライム等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、酢酸エチル、酢酸メチル等のエステル類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0025】

反応試剤の使用量は、通常、一般式[II]で示される化合物 1 モルに対し、一般式[V]で示される化合物が 1.0~20.0 倍モルである。

benzene、toluene、xylene or other aromatic hydrocarbons、pentane、hexane、petroleum ether or other aliphatic hydrocarbons、dichloromethane、dichloroethane、chloroform、carbon tetrachloride、1, 2- dichloroethane、chlorobenzene、o-dichlorobenzene or other halogenated hydrocarbons、ethylacetate、methyl acetate or other esters、and it can use the mixed solvent which combines solvent which is selected from these.

[0021]

triethylamine、tributyl amine and N,N,-dimethyl aniline, it can increase pyridine、4- N, N- dimethylamino pyridine or other organic base、sodium hydroxide、potassium hydroxide、sodium carbonate、potassium carbonate or other inorganic base as base which you can use.

[0022]

As for amount used of reactant, compound which is shown with General Formula {III } vis-a-vis compound 1 mole which usually, is shown with General Formula {II }, 0.8- 2.0 times mols, base 1.0 - 2.0 is times equivalent.

reaction temperature from 0 deg C can set temperature of option between the reflux temperature of reaction system.

reaction time differs depending upon compound but it can set between usually 1 hour~2 4 hours.

[0023]

In step 2, compound [IV] can produce the compound of this invention which is displayed with General Formula {I } by reacting with hydrazine which is displayed with General Formula {V }.

[0024]

If it is a solvent which does not obstruct reaction as solvent which can be used here, it is good, for example diethyl ether、tetrahydrofuran、dioxane、diglyme or other ethers、benzene、toluene、xylene or other aromatic hydrocarbons、pentane、hexane、petroleum ether or other aliphatic hydrocarbons、dichloromethane、dichloroethane、chloroform、carbon tetrachloride、1, 2- dichloroethane、chlorobenzene、o-dichlorobenzene or other halogenated hydrocarbons、ethylacetate、methyl acetate or other esters、and it can use mixed solvent which combines solvent which is selected from these.

[0025]

As for amount used of reactant, compound which is shown with General Formula {V } vis-a-vis compound 1 mole which usually, is shown with General Formula {II }, is 1.0 - 20.0

反応温度は 0 deg C から反応系の還流温度の間で任意の温度を設定できる。

反応時間は化合物により異なるが通常 1 時間～24 時間の間で設定できる。

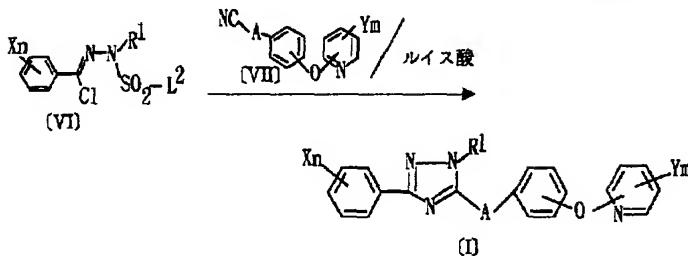
【0026】

工程 1、工程 2 の反応の具体例は例えば、シンセシス(Synthesis)第 483 頁(1983 年)に記載されている。

製造法 2

【0027】

【化 6】



(式中、 L^2 はアルキル基又はアルキル基で置換されてもよいフェニル基を示し、A、R¹、X、Y、m、および n は前記と同じ意味を示す。)

【0028】

一般式 [I] で示される本発明化合物は一般式 [VI] で示されるベンゾヒドラゾノイルクロライド誘導体と一般式 [VII] で示されるベンゾニトリル誘導体とをルイス酸の存在下、不活性溶媒中で反応させて製造することができる。

【0029】

本反応において使用できる溶媒としては、反応を阻害しない溶媒であれば良く、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジグライム等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0030】

使用するルイス酸としては臭化アルミニウム、

molar multiple.

reaction temperature from 0 deg C can set temperature of option between the reflux temperature of reaction system.

reaction time differs depending upon compound but it can set between usually 1 hour~2 4 hours.

【0026】

embodiment of reaction of step 1、step 2 is stated in for example Synthesis (0039 - 7881, SYNTBF) (Synthesis (0039 - 7881, SYNTBF)) p.483 (1983).

production method 2

【0027】

[Chemical Formula 6]

(In Formula, L^2 shows optionally substitutable phenyl group with alkyl group or alkyl group, A, R¹, X, Y, m, and n show same meaning as description above.)

【0028】

the compound of this invention which is shown with General Formula {I} reacting under existing of Lewis acid and in inert solvent, can produce benzo hydrazoneoyl chloride derivative which is shown with General Formula [VI] and benzonitrile derivative which is shown with General Formula {VII}.

【0029】

If it is a solvent which does not obstruct reaction as solvent which can be used in this reaction, it is good, for example diethyl ether, tetrahydrofuran, dioxane, diglyme or other ethers, benzene, toluene, xylene or other aromatic hydrocarbons, pentane, hexane, petroleum ether or other aliphatic hydrocarbons, dichloromethane, dichloroethane, chloroform, carbon tetrachloride, 1, 2- dichloroethane, chlorobenzene, o-dichlorobenzene or other halogenated hydrocarbons, and it can use the mixed solvent which combines solvent which is selected from these.

【0030】

aluminum bromide, aluminum chloride, ferric chloride,

塩化アルミニウム、塩化第二鉄、三フッ化ホウ素、四塩化チタン等を例示できる。

また、反応試剤の使用量は、通常、一般式[VI]で示される化合物1モルに対し、一般式[VII]で示される化合物が1.0~2.0倍モル、ルイス酸が1.0~2.0倍モルである。

反応温度は0degCから反応系の還流温度の間で任意の温度あり、反応時間は化合物により異なるが通常30分~8時間の間で設定できる。

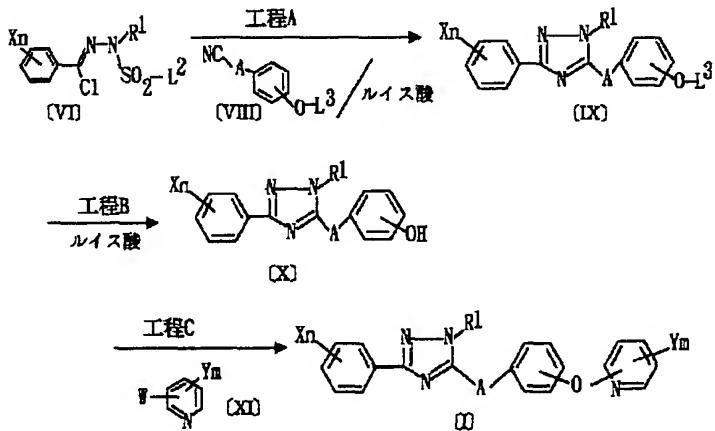
[0031]

この反応の具体例は例えばブリティン・オブ・ザ・ケミカル・ソサエティー・オブ・ジャパン(Bull.Chem.Soc.Jpn)第56巻、第545頁(1983年)に記載されている。

製造法3

[0032]

[化7]



(式中、L³はアルキル基又はベンジル基を示し、W、L²、A、R¹、X、Y、m、およびnは前記と同じ意味を示す。)

[0033]

製造法3の工程Aにおいて、一般式[VI]で表されるベンゾヒドラゾノイルクロリド誘導体をルイス酸の存在下、一般式[VIII]で表されるニトリル誘導体と不活性溶媒中で反応させて一般式[IX]で表される化合物が製造される。

[0034]

工程Aで、使用できる溶媒としては、反応を阻害しない溶媒であれば良く、例えばジエチルエ

ボロン trifluoride、titanium tetrachloride etc can be illustrated as Lewis acid which you use.

In addition, as for amount used of reactant, compound which is shown with General Formula {VII} vis-a-vis compound 1 mole which usually, is shown with the General Formula [VI], 1.0 - 2.0 times mols, Lewis acid is 1.0 - 2.0 times mols.

As for reaction temperature from 0 deg C there is a temperature of option between reflux temperature of reaction system, reaction time differs depending upon compound but it can set between usually 30 min~8-hour.

[0031]

embodiment of this reaction is stated in for example Bulletin of the Chemical Society of Japan (Bulletin of the Chemical Society of Japan (0009 - 2673, BCSJA)) Vol.56、p.545 (1983).

production method 3

[0032]

[Chemical Formula 7]

(In Formula, L³ shows alkyl group or benzyl group, W, L²、A、R¹、X、Y、m、 and n show same meaning as description above.)

[0033]

In step A of production method 3, reacting in nitrile derivative and inert solvent which under existing of Lewis acid, are displayed benzo hydrazoneyl chloride derivative which is displayed with General Formula [VI] with General Formula {VIII} compound which is displayed with General Formula {IX} is produced.

[0034]

With step A, if it is a solvent which does not obstruct reaction as solvent which can be used, it is good, for example diethyl

ーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジグライム等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0035】

使用するルイス酸としては臭化アルミニウム、塩化アルミニウム、塩化第二鉄、三フッ化ホウ素、四塩化チタン等を例示できる。

また、反応試剤の使用量は、通常、一般式[VI]で示される化合物 1 モルに対し、一般式[VIII]で示される化合物が 1.0~2.0 倍モル、ルイス酸が 1.0~2.0 倍モルである。

反応温度は 0 deg C から反応系の還流温度の間で任意であり、反応時間は化合物により異なるが通常 30 分~8 時間の間で設定できる。

【0036】

工程 B において一般式[IX]で表される化合物を不活性溶媒中、ルイス酸で処理することにより一般式[X]で表される化合物が製造される。

【0037】

工程 B で、使用できる溶媒としては、反応を阻害しない溶媒であれば良く、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジグライム等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、およびこれらから選択される溶媒を組み合わせた混合溶媒を用いることができる。

【0038】

使用するルイス酸としては臭化アルミニウム、塩化アルミニウム、三臭化ホウ素等を例示できる。

また、反応試剤の使用量は、通常、一般式[IX]で示される化合物 1 モルに対し、ルイス酸が 1.0~10.0 倍モルである。

反応温度は-80 deg C から反応系の還流温度の間で任意であり、反応時間は化合物により異なるが通常 30 分~8 時間の間で設定できる。

ether、tetrahydrofuran、dioxane、diglyme or other ethers、benzene、toluene、xylene or other aromatic hydrocarbons、pentane、hexane、petroleum ether or other aliphatic hydrocarbons、dichloromethane、dichloroethane、chloroform、carbon tetrachloride、1, 2- dichloroethane、chlorobenzene、o-dichlorobenzene or other halogenated hydrocarbons、and it can use the mixed solvent which combines solvent which is selected from these.

【0035】

aluminum bromide、aluminum chloride、ferric chloride、boron trifluoride、titanium tetrachloride etc can be illustrated as Lewis acid which you use.

In addition, as for amount used of reactant, compound which is shown with General Formula {VIII} vis-a-vis compound 1 mole which usually, is shown with the General Formula [VI], 1.0 - 2.0 times mols, Lewis acid is 1.0 - 2.0 times mols.

As for reaction temperature from 0 deg C in option , as for reaction time itdiffers between reflux temperature of reaction system depending upon compound but itcan set between usually 30 min~8-hour.

【0036】

compound which is displayed with General Formula {X} by in inert solvent,treating compound which is displayed with General Formula {IX} in step B with Lewis acid is produced.

【0037】

With step B, if it is a solvent which does not obstruct reaction as solvent which can be used, it is good, for example diethyl ether、tetrahydrofuran、dioxane、diglyme or other ethers、benzene、toluene、xylene or other aromatic hydrocarbons、pentane、hexane、petroleum ether or other aliphatic hydrocarbons、dichloromethane、dichloroethane、chloroform、carbon tetrachloride、1, 2- dichloroethane、chlorobenzene、o-dichlorobenzene or other halogenated hydrocarbons、and it can use the mixed solvent which combines solvent which is selected from these.

【0038】

aluminum bromide、aluminum chloride、boron tribromide etc can be illustrated as Lewis acid which you use.

In addition, as for amount used of reactant, Lewis acid is 1.0 - 10.0 molar multiple vis-a-vis compound 1 mole which usually, is shown with General Formula {IX}.

As for reaction temperature - from 80 deg C in option , as for reaction time itdiffers between reflux temperature of reaction system depending upon compound but itcan set between

るが通常 30 分~8 時間の間で設定できる。

【0039】

工程 Cにおいて一般式[X]で表される化合物と一般式[XI]で表される化合物を塩基の存在下、不活性溶媒中で反応させることにより、一般式[I]で表される本発明化合物を得ることができる。

【0040】

ここで使用できる塩基としては、水素化ナトリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の無機塩基、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等があげられる。

【0041】

ここで使用できる溶媒としては、メタノール、エタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエンの芳香族炭化水素類、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、およびこれらから選択される溶媒を組み合せた混合溶媒を用いることができる。

【0042】

反応温度は 0 deg C から反応系の還流温度の間で任意である。

反応時間は 1 時間~40 時間の間で設定できる。

【0043】

【実施例】

次に実施例をあげて本発明化合物の製造法並びに製剤法、用途を具体的に説明する。

【0044】

製造例 1 3-(2,6-ジフルオロフェニル)-1-メチル-5-[4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノキシメチル]-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 14)の製造

2,6-ジフルオロベンズイミド酸エチル(1.00g,5.40mmol), トリエチルアミン(0.55g,5.40mmol), トルエン(20ml)の混合物に4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノキシ酢酸クロリド(1.33g,4.00mmol)を加え、室温で 24 時間攪拌した。

usually 30 min~8-hour.

【0039】

the compound of this invention which is displayed compound which is displayed with the General Formula {X } in step C and compound which is displayed with General Formula {XI } with General Formula {I } by reacting under existing of base and in inert solvent, is obtained, it is dense る。

【0040】

You can list sodium hydride、sodium hydroxide、potassium hydroxide、sodium carbonate、potassium carbonate or other inorganic base、potassium t- butoxide or other alkali metal alkoxide etc as base which can be used here.

【0041】

aromatic hydrocarbons、tetrahydrofuran、1, 4- dioxane、1, 2-dimethoxyethane or other ethers、chloroform、1,2-dichloroethane or other halogenated hydrocarbons、N, N- di methylformamide、N, N- dimethylacetamide or other amides、dimethyl sulfoxide or other sulfoxide、of methanol、ethanol or other alcohols、benzene、toluene and mixed solvent which combines solvent which is selected from these can be used as solvent which can be used here.

【0042】

reaction temperature from 0 deg C is option between reflux temperature of reaction system.

It can set reaction time between 1 hour~4 0 hour.

【0043】

【Working Example(s)】

Listing execution example next, you explain production method and formulation method、application of the compound of this invention concretely.

【0044】

Production Example 1 3- (2 and 6 -difluoro phenyl) - 1 -methyl-5- {4 - (5 -trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenoxy methyl } - production of 1 H-1,2, 4- triazole (compound number 14)

2 and 6 -difluoro benz ethyl imidate (1.00 g,5.40 mmol), triethylamine (0.55 g,5.40 mmol), in mixture of toluene (20 ml) 24 hours it agitated with room temperature 4 - including (5 -trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenoxy acetyl chloride (1.33 g,4.00 mmol).

反応液を5%塩酸、水で洗浄した後、乾燥した有機層にメチルヒドラジン(0.5g,11mmol)を加え、1時間加熱還流した。

反応液に水を加え酢酸エチルで抽出し、抽出液を無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧下で濃縮した。

得られた濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、無色粒状結晶の目的物(0.34g、融点 110~114 deg C)を得た。

【0045】

NMR デ-タ(60MHz、CDCl₃溶媒、δ 値:ppm)

4. 06			(3H,	s)		
4.06			3 H,	s)		
5. 28			(2H,	s)		
5.28			2 H,	s)		
6. 7 ~ 7. 5			(5H,	m)		
6.7 - 7.5			5 H,	m)		
7. 80			(1H,	d-d)	
7.80			1 H,	d - d)	
8. 37			(1H,	m)		
8.37			1 H,	m)		

【0046】

製造例 2 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-[4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェニルメチル]-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 55)の製造

N-メチル-N-(p-トルエンスルホニル)-2-クロロ-6-フルオロベンゾヒドラゾノイルクロリド(1.13g,3.01mmol)、4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェニルアセトニトリル(0.85g,3.05mmol)、無水塩化第二鉄(0.54g,3.33mmol)、o-ジクロロベンゼン(2.5ml)の混合物を130 deg Cで1時間攪拌した。

室温に冷却後、反応液をクロロホルムに溶解し、5%水酸化ナトリウム水溶液、水で洗浄し、クロロホルム抽出液を無水硫酸マグネシウムで乾

After washing reaction mixture with 5% hydrochloric acid, water, 1 hour heating and refluxing it made organic layer which is dried including methyl hydrazine (0.5 g, 11 mmol).

In reaction mixture it extracted with ethylacetate including water, with the anhydrous magnesium sulfate concentrated extracted liquid after drying and under vacuum.

concentrate which it acquires was refined with silica gel column chromatography, object compound (0.34 g, melting point 110~114 deg C) of colorless granular crystal was acquired.

[0045]

nmr data (60 MHz、CDCl₃溶媒、δ 値:ppm)

【0046】

Production Example 2 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-5- {4 - (5 -trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenylmethyl } - production of 1 H-1,2, 4- triazole (compound number 55)

N- methyl-N- (p- toluene sulfonyl) - 2 -chloro-6-fluoro benzo hydrazonoyl chloride (1.13 g,3.01 mmol), 4 - (5 -trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenyl acetonitrile (0.85 g,3.05 mmol), anhydrous ferric chloride (0.54 g,3.33 mmol), the mixture of o-dichlorobenzene (2.5 ml) 1 hour was agitated with 130 deg C.

After cooling, it melted reaction mixture in chloroform in room temperature, 5% sodium hydroxide water solution, washed with water, with anhydrous magnesium sulfate

燥後、減圧下で濃縮した。

得られた濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、褐色粘稠物質の目的物(0.98g、 $n_D^{20}=1.5590$)を得た。

【0047】

NMR デ-タ(60MHz、 $CDCl_3$ 溶媒、 δ 値:ppm)

3. 77			(3H,	s)		
3.77			3 H,	s)		
4. 22			(2H,	s)		
4.22			2 H,	s)		
6. 8 ~ 7. 5			(5H,	m)		
6.8 - 7.5			5 H,	m)		
7. 83			(1H,	d-d)	
7.83			1 H,	d - d)	
8. 40			(1H,	m)		
8.40			1 H,	m)		

【0048】

製造例 3 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-[4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)- α , α -ジメチルベンジル]-1H-1,2,4-トリアゾール(化合物番号 85)の製造

N-メチル-N-(p-トルエンスルホニル)-2-クロロ-6-フルオロベンズヒドラゾノイルクロリド(5.63g,15.0mmol)、4-メトキシ- α , α -ジメチルベンジルシアニド(2.76g,16.9mol)、無水塩化第二鉄(2.55g,15.8mol)、o-ジクロロベンゼン(10ml)の混合物を、120~130 deg C で 1 時間加熱攪拌した。

室温に冷却後、反応液をクロロホルムに溶解し、5%水酸化ナトリウム水溶液、水で洗浄し、クロロホルム抽出液を無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧下で濃縮した。

得られた濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、3-(2-クロロ-6-フルオロフェニ

concentrated chloroform extraction liquid after drying and under vacuum.

concentrate which it acquires was refined with silica gel column chromatography, object compound (0.98 g, $n_D^{20}=1.5590$) of brown viscous substance quality was acquired.

【0047】

nmr data (60 MHz、 $CDCl_3$ solvent、 δ value: ppm)

【0048】

Production Example 3 3- (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-5- {4 - (5 -trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) -;al and;al -dimethyl benzyl} - production of 1 H-1,2, 4- triazole (compound number 85)

N- methyl-N- (p- toluene sulfonyl) - 2 -chloro-6-fluoro benzohydrazonoyl chloride (5.63 g,15.0 mmol), 4 -methoxy-the;al and the;al -dimethyl thebenzyl cyanide (2.76 g,16.9 mol), anhydrous ferric chloride (2.55 g,15.8 mol), mixture of o-dichlorobenzene (10 ml), 1 hour heat and stir wasdone with 120 - 130 deg C.

After cooling, it melted reaction mixture in chloroform in room temperature, 5% sodium hydroxide water solution, washed with water, with anhydrous magnesium sulfate concentrated chloroform extraction liquid after drying and under vacuum.

concentrate which it acquires was refined with silica gel column chromatography, 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5

ル)-5-(4-メトキシ- α , α -ジメチルベンジル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(1.90g)を得た。

【0049】

NMR デ-タ(60MHz, CDCl₃溶媒、δ 値:ppm)

-(4-methoxy-;al and;al -dimethyl benzyl) - 1 -methyl-1H-1,2,4- triazole (1.90 g) was acquired.

[0049]

nmr data (60 MHz, CDCl₃solvent, ;de value: ppm)

2. 80			(6H,	s)
2.80			6 H,	s)
3. 40			(3H,	s)
3.40			3 H,	s)
3. 82			(3H,	s)
3.82			3 H,	s)
6. 8			(7H,	m)
6.8			7 H,	m)

【0050】

得られた3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-5-(4-メトキシ- α , α -ジメチルベンジル)-1-メチル-1H-1,2,4-トリアゾール(1.90g,5.29mmol)、無水塩化アルミニウム(2.12g,15.9mmol)、ベンゼン(200ml)の混合物を3.5時間加熱還流した。

反応液に水を加え酢酸エチルで抽出し、抽出液を水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

減圧下で濃縮して得られた粗結晶をヘキサンで洗浄し、3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-(4-ヒドロキシ- α , α -ジメチルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール(1.50g)を得た。

【0051】

NMR デ-タ(60MHz, CDCl₃溶媒、δ 値:ppm)

3 it acquires - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 5 - (4 -methoxy-;al and;al -dimethyl benzyl) - 1 -methyl-1H-1,2,4- triazole (1.90 g,5.29 mmol), anhydrous aluminum chloride (2.12 g,15.9 mmol), mixture of benzene (200 ml) was done 3.5 hours heating and refluxing.

In reaction mixture it extracted with ethylacetate including water, after water wash, dried extracted liquid with anhydrous magnesium sulfate.

Concentrating under vacuum, you washed crude crystal which it acquires with hexane, 3 - (2 -chloro-6-fluorophenyl) - 1 -methyl-5 - (4 -hydroxy-;al and;al -dimethyl benzyl) - acquired 1 H-1,2,4- triazole (1.50 g).

[0051]

nmr data (60 MHz, CDCl₃solvent, ;de value: ppm)

2. 77				(6H,	s)
2.77				6 H,	s)
3. 33				(3H,	s)
3.33				3 H,	s)
6. 6	7			(8H,	m)
6.6	7				

6.6	7			8 H,	m)
-----	---	--	--	------	----

【0052】

[0052]

得られた 3-(2-クロロ-6-フルオロフェニル)-1-メチル-5-(4-ヒドロキシ- α , α -ジメチルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール(0.70g,2.0mmol)、2-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン(0.40g,2.2mmol)、炭酸カリウム(0.30g,2.2mmol)、N,N-ジメチルホルムアミド(30ml)の混合物を100 deg Cで1時間加熱した。

反応液に水を加え酢酸エチルで抽出し、抽出液を水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

得られた濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、ガラス状物質の目的物(0.70g)を得た。

【0053】

NMR δ -タ(60MHz, CDCl₃溶媒、 δ 値:ppm)nmr data (60 MHz, CDCl₃ solvent, δ value: ppm)

1. 86			(6H,	s)		
1.86			6 H,	s)		
3. 43			(3H,	s)		
3.43			3 H,	s)		
6. 9 ~ 7. 5			(7H,	m)		
6.9 - 7.5			7 H,	m)		
7. 88			(1H,	d-d)	
7.88			1 H,	d - d)	
8. 57			(1H,	m)		
8.57			1 H,	m)		

【0054】

[0054]

参考例 1-4-ヒドロキシフェニルアセトニトリル(7.32g)、5-トリフルオロメチル-2-クロロピリジン(9.08g)、炭酸カリウム(7.6g)、N,N-ジメチルホルムアミド(100ml)の混合物を100 deg Cで1時間加熱した。

反応液に水を加え酢酸エチルで抽出し、抽出液を水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、減圧下で濃縮した。

Reference Example 1-4-hydroxyphenyl acetonitrile (7.32 g), 5-trifluoromethyl-2-chloropyridine (9.08 g), potassium carbonate (7.6 g), mixture of N, N-dimethylformamide (100 ml) 1 hour was heated with 100 deg C.

In reaction mixture it extracted with ethylacetate including water, after water wash, dried extracted liquid with anhydrous magnesium sulfate, concentrated under the vacuum.

得られた濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェニルアセトニトリル(9.4g)を得た。

【0055】

参考例 2 4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノール(2.56g)、プロモ酢酸メチル(1.53g)、炭酸カリウム(1.4g)、アセトニトリル(30ml)の混合物を5時間加熱還流した。

反応液に水を加え酢酸エチルで抽出し、抽出液を5%水酸化ナトリウム水溶液で洗浄後、水洗し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧下で濃縮し、4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノキシ酢酸メチルエステル(2.63g)を得た。

【0056】

得られた4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノキシ酢酸メチルエステル(2.63g)、水酸化カリウム(2.0g)、エタノール(10ml)の混合物を1時間加熱還流した。

反応後、水を加えてエーテル抽出した。

水層を氷冷しながら硫酸で酸性とし、酢酸エチルで抽出し、抽出液を水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

減圧下で濃縮し、4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノキシ酢酸(1.96g)を得た。

【0057】

得られた4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノキシ酢酸(1.96g)、塩化チオニル(3ml)、トルエン(20ml)の混合物を3時間加熱還流し、減圧下で濃縮して4-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ)フェノキシ酢酸クロリドを定量的に得た。

【0058】

参考例 3 4-メトキシフェニルアセトニトリル(20.0g, 0.136mol)、ジメチルスルホキシド(300ml)の混合物を氷冷しながら粉末状の水酸化カリウム(22.9g, 0.40mol)を加え30分攪拌した。

この混合物にヨードメタン(57.9g, 0.408mol)を20deg Cから50deg Cの間で滴下し、さらに室温で3時間、50deg Cで1時間攪拌した。

反応液を氷にあけ、トルエンで抽出して、抽出液を水洗後、有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥し、減圧下で濃縮した。

得られた濃縮物を減圧蒸留(留分: 145~150deg

concentrate which it acquires was refined with silica gel column chromatography, 4-(5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenyl acetonitrile (9.4 g) was acquired.

[0055]

Reference Example 2 4-(5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenol (2.56 g), methyl bromoacetate (1.53 g), potassium carbonate (1.4 g), mixture of the acetonitrile (30 ml) was done 5 hours heating and refluxing.

In reaction mixture it extracted with ethylacetate including water, afterwashing, water wash did extracted liquid with 5% sodium hydroxide water solution, with the anhydrous magnesium sulfate concentrated after drying, and under vacuum 4 - acquired the(5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenoxy methyl acetate (2.63 g).

[0056]

4 it acquires - (5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenoxy methyl acetate ester (2.63 g), potassium hydroxide (2.0 g), mixture of the ethanol (10 ml) was done 1 hour heating and refluxing.

After reacting, ether extraction it did including water.

While ice cooling doing water layer, it made acidic with sulfuric acid, extracted with ethylacetate, after water wash, dried extracted liquid with the anhydrous magnesium sulfate.

It concentrated under vacuum, 4 - acquired (5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenoxy acetic acid (1.96 g).

[0057]

4 it acquires - (5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenoxy acetic acid (1.96 g), thionyl chloride (3 ml), 3 hours heating and refluxing it did the mixture of toluene (20 ml), concentrated under vacuum and 4 - acquired (5-trifluoromethyl pyridine - 2 -yloxy) phenoxy acetyl chloride in quantitative.

[0058]

While Reference Example 3 4-methoxyphenyl acetonitrile (20.0 g, 0.136 mol), ice cooling doing mixture of dimethyl sulfoxide (300 ml), 30 min it agitated including potassium hydroxide (22.9 g, 0.40 mol) of powder.

In this mixture from 20 deg C it dripped iodomethane (57.9 g, 0.408 mol) between 50 deg C, furthermore with room temperature 1 hour agitated with 3 hours, 50 deg C.

You opened reaction mixture to ice, extracted with toluene, extracted liquid after water wash, dried concentrated organic layer with anhydrous magnesium sulfate, under vacuum.

With (distillation fraction: 145~150 deg C/15~17 mmHg)

C/15~17mmHg)することによって、4-メトキシ- α 、 α -ジメチルベンジルシアニド(12.1g)を得た。

【0059】

本発明の殺虫、殺ダニ剤は、一般式[I]で示される3-フェニルトリアゾール誘導体を有効成分としてなる。

【0060】

本発明化合物を殺虫、殺ダニ剤として使用するには本発明化合物それ自体で用いてもよいが、製剤化に一般的に用いられる担体、界面活性剤、分散剤又は補助剤等を配合して、粉剤、水和剤、乳剤、微粒剤又は粒剤等に製剤して使用することもできる。

製剤化に際して用いられる担体としては、タルク、ペントナイト、クレー、カオリソ、珪藻土、ホワイトカーボン、バーミキュライト、消石灰、珪砂、硫酸、尿素等の固体担体、イソプロピルアルコール、キシレン、シクロヘキサン、メチルナフタレン等の液体担体等があげられる。

界面活性剤及び分散剤としては、アルキルベンゼンスルホン酸金属塩、ジナフチルメタンジスルホン酸金属塩、アルコール硫酸エステル塩、アルキルアリールスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、ポリオキシエチレングリコールエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンソルビタンモノアルキレート等があげられる。

補助剤としては、カルボキシメチルセルロース、ポリエチレングリコール、アラビアゴム等があげられる。

使用に際しては適当な濃度に希釈して散布するか又は直接施用する。

【0061】

本発明の殺虫、殺ダニ剤は茎葉散布、土壤施用、育苗箱施用又は水面施用等により使用することができる。

有効成分の配合割合については必要に応じて適宜選ばれるが、粉剤又は粒剤とする場合は0.05~20%(重量)、好ましくは0.1%~10%(重量)の範囲から適宜選ぶのがよい。

乳剤又は水和剤とする場合は0.5~80%(重量)が適当である。

好ましくは1~60%(重量)の範囲から適宜選ぶのがよい。

thing which vacuum distillation does concentrate which it acquires, 4-methoxy- the;al and the;al -dimethyl benzyl cyanide (12.1 g) was acquired.

【0059】

insecticidal、miticide of this invention becomes 3 -phenyl triazole derivative where it is shown with the General Formula {I } as active ingredient.

【0060】

You use the compound of this invention as insecticidal, miticide, it is possible to use with that itself of the compound of this invention, but combining support, surfactant, dispersant or auxiliary agent etc which is used for formulating generally, formulation making powder agent, wettable, emulsion, fine granule, or the granule etc it can also use.

talc, bentonite (DANA 71.3.1a.1-2), clay, kaolin, diatomaceous earth, white carbon, vermiculite (DANA 71.2.2d.3), you can list hydrated lime, silica sand, ammonium sulfate, urea or other solid carrier, isopropyl alcohol, xylene, cyclohexanone, methyl naphthalene or other liquid carrier etc as support which is used in case of formulating.

As surfactant and dispersant, you can list alkylbenzene sulfonic acid metal salt, dinaphthyl methane disulfonic acid metal salt, alcohol sulfuric acid ester salt, alkylaryl sulfonic acid salt, lignin sulfonate, polyoxyethylene glycol ether, polyoxyethylene alkyl aryl ether, polyoxyethylene sorbitan mono alkylate etc.

As auxiliary agent, you can list carboxymethyl cellulose and polyethylene glycol, gum arabic etc.

Diluting in suitable concentration at time of use, scattering fabric it does, or application does directly.

【0061】

You can use insecticidal、miticide of this invention foliage spreading, soil application, seedling box application or with water surface application etc.

according to need as needed it is chosen concerning proportion of active ingredient, but when it makes powder agent or granule, 0.05 - 20% (weight), it is good as needed to choose from range of preferably 0.1%~10% (weight).

When it makes emulsion or wettable, 0.5 - 80% (weight) are suitable.

It is good as needed to choose from range of preferably 1~60% (weight).

【0062】

本発明の殺虫、殺ダニ剤の施用量は使用される化合物の種類、対象害虫、発生傾向、被害の程度、環境条件、使用する剤型などによってかかるが、粉剤及び粒剤のようにそのまま使用する場合は、有効成分として 10 アール当たり 0.05g~5kg、好ましくは 0.1g~1kg の範囲から適宜選ぶのがよい。

また、乳剤及び水和剤のように液状で使用する場合は、0.1~5,000ppm、好ましくは 1~1,000ppm の範囲から適宜選ぶのがよい。

【0063】

本発明の殺虫、殺ダニ剤は、他の殺虫剤、殺菌剤、肥料、植物生長調節剤を混合して使用することもできる。

【0064】

次に、代表的な製剤例をあげて製剤方法を具体的に説明する。

化合物、添加剤の種類及び配合比率は、これのみに限定されることなく広い範囲で変更可能である。

以下の説明において、%は重量百分率を示す。

【0065】

製剤例 1 乳剤

化合物番号(86)30%、シクロヘキサン 20%、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル 11%、アルキルベンゼンズルホン酸カルシウム 4%及びメチルナフタレン 35%を均一に乳化して乳剤とした。

【0066】

製剤例 2 水和剤

化合物番号(108)40%、珪藻土 15%、クレー 15%、ホワイトカーボン 25%、ジナフチルメタンジスルホン酸ナトリウム 2%及びリグニンスルホン酸ナトリウム 3%を均一に混合粉碎して水和剤とした。

【0067】

製剤例 3 粉剤

化合物番号(85)2%、珪藻土 5%及びクレー93%を均一に混合粉碎して粉剤とした。

【0068】

製剤例 4 粒剤

【0062】

application amount of insecticidal、miticide of this invention extent、environmental condition、of kind、object insect pest、tendency to occur、damage of the compound which is used changes with drug form etc which is used, but the powder agent and like granule when you use that way, it is good as needed to choose from range of per 10 ares 0.05g~5 kg, preferably 0.1 g~1 kg, as active ingredient.

In addition, like emulsion and wettable when you use with liquid state, it is good as needed to choose from range of 0.1 - 5,000 ppm, preferably 1~1,000 ppm.

【0063】

insecticidal、miticide of this invention can also use, mixing other insecticide、microbicide、fertilizer、plant growth regulator.

【0064】

Next, increasing representative Formulation Example, you explain formulation method concretely.

kind and mixing ratio of compound、additive are changeable in wide range without being limited in only this.

At time of explaining below, % weight percent is shown.

【0065】

Formulation Example 1 emulsion

compound number (86) 30%, emulsifying cyclohexanone 20%、polyoxyethylene alkyl aryl ether 11%、calcium alkylbenzenesulfonate 4% and methyl naphthalene 35% in uniform, it made emulsion.

【0066】

Formulation Example 2 wettable

compound number (108) 40%, mixing and pulverization designating diatomaceous earth 15%、clay 15%、white carbon 25%、sodium dinaphthyl methane disulfonate 2% and sodium lignin sulfonate 3% as the uniform, it made wettable.

【0067】

Formulation Example 3 powder agent

compound number (85) 2%, mixing and pulverization designating diatomaceous earth 5% and clay 93% as the uniform, it made powder agent.

【0068】

Formulation Example 4 granule

化合物番号(68)5%、ラウリルアルコール硫酸エステルのナトリウム塩 2%、リグニンスルホン酸ナトリウム 5%、カルボキシメチルセルロース 2% 及びクレー86%を均一に混合粉碎する。

この混合物 100 重量部に水 20 重量部を加えて練合し、押出式造粒機を用いて 14~32 メッシュの粒状に加工したのち、乾燥して粒剤とした。

【0069】

【発明の効果】

本発明の 3-フェニルトリアゾール誘導体は、半翅目害虫(例えば、ウンカ類、ヨコバイ類、アブラムシ類、コナジラミ類、カメムシ類、カイガラムシ類など)、鱗翅目害虫(例えば、ヨトウムシ類、コナガ、ハマキムシ類、メイガ類、シンクイムシ類、モンシロチョウなど)、鞘翅目害虫(例えば、ゴミムシダマシ類、ゾウムシ類、ハムシ類、コガネムシ類など)、双翅目害虫(例えば、イエバエ、アカイエカなど)、直翅目害虫(例えば、ワモンゴキブリ、チャバネゴキブリなど)、ハダニ類(例えば、ナミハダニ、カンザワハダニ、ミカンハダニなど)、線虫類などに対して、優れた防除効果を示す。

【0070】

次に本発明化合物の奏する効果について試験例をもって説明する。

試験例 1 コナガ殺虫試験

製剤例 2 に準じて調製した水和剤を有効成分として 500ppm の濃度に水で希釈した。

その薬液にキャベツ葉を浸漬し、風乾後、容量 60ml の塩化ビニル製カップに入れた。

その中にコナガ 3 齢幼虫 10 頭を放ち、蓋をした。

その後、25 deg C の恒温室に置き、6 日後に死虫数を調査し数 1 の計算式により死虫率を求めた。

compound number (68) 5%, sodium salt 2%、sodium lignin sulfonate 5%、carboxymethyl cellulose 2% of lauryl alcohol sulfate ester and clay 86% the mixing and pulverization it makes uniform.

Kneading combination it made this mixture 100 parts by weight including water 20 parts by weight, after processing in granular of 14 - 32 mesh making use of the extrusion type granulator, drying, it made granule.

【0069】

【Effects of the Invention】

this invention 3 -phenyl triazole derivative show protective effect which is superior Hemiptera insect pest (for example Delphacidae (delphacid planthoppers), Deltoccephalidae (leafhoppers), Aphididae (aphids), Aleyrodidae (whiteflies), Pentatomidae (stink bugs), scale insects etc), the lepidopteran pest (for example armyworms、 Plutella xylostella (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth), Tortricidae, Pyralidae 、 Carposinidae、 Pieris rapae crucivora Boisduval (common white, common cabbage worm) etc), Coleoptera insect pest (for example Tenebrionidae (darkling beetles), Curculionidae (weevils), Chrysomelidae (leaf beetles), Scarabaeidae etc), Diptera insect pest (for example Muscidae (house flies), Culex pipiens Pallens etc), Orthoptera insect pest (for example Periplaneta americana [Linnaeus] (American cockroach), Blattella germanica [Linnaeus] (German cockroach) etc), Tetranychidae (spider mite) (for example Tetranychus urticae Koch (two-spotted spider mite), Tetranychus kanzawai Kishida (Kanzawa spider mite), Panonychus citri [McGregor] (citrus red mite) etc), vis-a-vis nematodes etc.

【0070】

Concerning effect which the compound of this invention has next you explain with the Test Example.

Test Example 1 Plutella xylostella (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth) insecticidal test

In concentration of 500 ppm it diluted with water with wettable which is manufactured according to Formulation Example 2 as active ingredient.

It soaked cabbage leaf in reagent solution, after air dry, inserted in the vinyl chloride cup of volume 60 ml.

Among those Plutella xylostella (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth) 3 -instar larva 10 heads were shot, cover was done.

After that, you placed in constant temperature chamber of 25 deg C, investigated the number of dead insects 6 days and later you sought insect mortality with computational formula of the Mathematical Formula 1.

死虫率を表 6 の基準により評価し、その結果を表 7 に示した。

なお、試験は 2 連続で行った。

【0071】

【数 1】

$$\text{死虫率} = \frac{\text{調査日の死虫数}}{\text{処理前幼虫数}} \times 100$$

【0072】

【表 6】

死虫率	評価
90%以上の死虫率	A
70%以上90%未満の死虫率	B
50%以上70%未満の死虫率	C
50%未満の死虫率	D

【0073】

【表 7】

化合物 番号	評価
55	A
68	A
108	B

【0074】

試験例 2 ナミハダニ殺ダニ試験

製剤例 2 に準じて調製した水和剤を有効成分として 500ppm の濃度に水で希釈した。

その薬液に、予めナミハダニ成虫を接種しておいたダイズ苗を浸漬し、風乾した。

処理後のダイズ苗は 25 deg C の恒温室に置き、14 日後に生存虫数を調査し、数 2 の計算式により防除価を求めた。

防除価を表 8 の基準により評価し、その結果を

insect mortality was appraised with standard of Table 6, result was shown in Table 7.

Furthermore, it tested with 2 connected systems.

【0071】

【Mathematical Formula 1】

【0072】

【Table 6】

【0073】

【Table 7】

【0074】

Test Example 2 Tetranychus urticae Koch (two-spotted spider mite) acaricidal test

In concentration of 500 ppm it diluted with water with wettable which is manufactured according to Formulation Example 2 as active ingredient.

In reagent solution, beforehand it soaked soybean seedling which inoculation does the Tetranychus urticae Koch (two-spotted spider mite) adult, air dry did.

You put soybean seedling after treating in constant temperature chamber of 25 deg C, investigated number of surviving insects 14 days, later you sought protection value with the computational formula of Mathematical Formula 2.

protection value was appraised with standard of Table 8,

表 9 示した。

試験は 2 連制で行った。

【0075】

【数 2】

$$\text{防除価} = \left(1 - \frac{\text{無処理区の処理前虫数}}{\text{処理区の処理前虫数}} \times \frac{\text{処理区の調査日成虫数}}{\text{無処理区の調査日成虫数}} \right) \times 100$$

【0076】

【表 8】

防除価	評価
90 % 以上の防除価	A
70 % 以上 90 % 未満の防除価	B
50 % 以上 70 % 未満の防除価	C
50 % 未満の防除価	D

result was shown Table 9.

It tested with 2 connected systems.

【0075】

【Mathematical Formula 2】

【0076】

【Table 8】

【0077】

【表 9】

化合物番号	評価
14	A
55	A
68	A
69	A
85	A
108	A

【0077】

【Table 9】